

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-212396

(43)Date of publication of application : 11.08.1998

---

(51)Int.Cl. C08L 63/00  
C08G 59/00  
C08K 3/22  
C08K 5/13  
H01L 23/29  
H01L 23/31

---

(21)Application number : 09-016527 (71)Applicant : HITACHI CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 30.01.1997 (72)Inventor : SAITO HIROYUKI  
TAKAHASHI YOSHIHIRO  
HAGIWARA SHINSUKE

---

(54) EPOXY RESIN MOLDING MATERIAL FOR SEALING ELECTRONIC COMPONENT  
AND ELECTRONIC PART ITEM SEALED THEREWITH

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain an epoxy resin molding material which is a non-halogen non-antimony type, has good moldability and excellent reliability and used for sealing electronic components and to provide an electronic part item sealed therewith.

SOLUTION: This invention provides an epoxy molding material essentially consisting of an epoxy resin, a phenol compound, molybdenum trioxide and/or tungsten trioxide and 85-95wt.%, based on the total composition, inorganic filler and an electronic part item prepared by sealing an element with this composition.

---

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 20.01.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

<sup>2</sup> 1-(O phr MoO<sub>3</sub> or WO<sub>3</sub>

AN 1998:512541 CAPLUS  
 DN 129:190277  
 ED Entered STN: 18 Aug 1998  
 TI **Epoxy resin** molding materials with good fire resistance and moldability for electronic part sealants, and electronic parts sealed with them  
 IN Saito, Hiroyuki; Takahashi, Yoshihiro; Hagiwara, Shinsuke  
 PA Hitachi Chemical Co., Ltd., Japan  
 SO Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 5 pp.  
 CODEN: JKXXAF  
 DT Patent  
 LA Japanese  
 IC ICM C08L063-00  
 ICS C08G059-00; C08K003-22; C08K005-13; H01L023-29; H01L023-31  
 CC 38-3 (Plastics Fabrication and Uses)  
 Section cross-reference(s): 37, 76

FAN.CNT 1

PATENT NO.	KIND	DATE	APPLICATION NO.	DATE
PI JP 10212396	A2	19980811	JP 1997-16527	19970130
PRAI JP 1997-16527		19970130		

CLASS

PATENT NO.	CLASS	PATENT FAMILY CLASSIFICATION CODES
✓ JP 10212396	ICM	C08L063-00
	ICS	C08G059-00; C08K003-22; C08K005-13; H01L023-29; H01L023-31

AB Title materials comprise (A) epoxy resins, (B) phenolic compds., (C) MoO<sub>3</sub> and/or WO<sub>3</sub>, and (D) 85-95% (on total material) inorg. fillers. Electronic parts obtained by sealing elements with the above materials, are also claimed. Thus a composition comprising Epikote YH 4000H (biphenyl-based epoxy resin) 100.0, Milex XL 225 91.0, Ph3P 3.5, MoO<sub>3</sub> 10.0, fused silica 1950.0, carnauba wax 1.0, polyethylene wax 3.0, carbon black 2.5, and alkylsilanes 7.5 parts, was transfer-molded to give a test piece showing UL-94 fire resistance rating V-0.

epoxy resin sealant fire resistance;  
moldability epoxy resin sealant electronic part;  
molybdenum trioxide fireproofing agent epoxy resin;  
tungsten trioxide fireproofing agent epoxy resin

IT Epoxy resins, uses  
 RL: POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); TEM (Technical or engineered material use); USES (Uses)

(epoxy resin molding materials containing MoO<sub>3</sub> and/or WO<sub>3</sub> as fireproofing agents for electronic part sealants)

IT Electric apparatus  
 Electronic packaging materials  
Fireproofing agents

(epoxy resin molding materials with good fire resistance and moldability for electronic part sealants)

IT Fillers  
 (inorg.; epoxy resin molding materials with good fire resistance and moldability for electronic part sealants)

IT 26834-02-6, Milex XL 225  
 RL: MOA (Modifier or additive use); USES (Uses)  
 (crosslinking agent; epoxy resin molding materials with good fire resistance and moldability for electronic part sealants)

IT 90837-23-3, YH 4000H  
 RL: POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); TEM (Technical or engineered material use); USES (Uses)  
 (epoxy resin molding materials containing MoO<sub>3</sub> and/or WO<sub>3</sub> as fireproofing agents for electronic part sealants)

biphenyl  
 epoxy  
 MoO<sub>3</sub>  
 ST  
 WO<sub>3</sub>(IT)

IT 60676-86-0, Fused silica

RL: MOA (Modifier or additive use); USES (Uses)

(filler; epoxy resin molding materials with good  
fire resistance and moldability for electronic part sealants)

IT 1313-27-5, Molybdenum trioxide, uses 1314-35-8, Tungsten  
trioxide, uses

RL: MOA (Modifier or additive use); USES (Uses)

(fireproofing agent; epoxy resin molding  
materials with good fire resistance and moldability for  
electronic part sealants)

DERWENT-ACC-NO: 1998-489562

DERWENT-WEEK: 199927

COPYRIGHT 2005 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Epoxy! resin moulding materials for sealing electronic parts - comprises epoxy! resin, a phenolic compound, molybdenum tri:oxide and/or tungsten tri:oxide, and an inorganic filler

PATENT-ASSIGNEE: HITACHI CHEM CO LTD[HITB]

PRIORITY-DATA: 1997JP-0016527 (January 30, 1997)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE	PAGES	MAINIPC
<u>JP 10212396 A</u>	August 11, 1998	N/A	005	C08L 063/00

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO	APPL-DATE
JP 10212396A	N/A	1997JP0016527	January 30, 1997

INT-CL (IPC): C08G059/00, C08K003/22, C08K005/13, C08L063/00, H01L023/29, H01L023/31

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 10212396A

BASIC-ABSTRACT:

In an epoxy resin moulding material consisting essentially of (A) an epoxy resin, (B) a phenolic cpd., (C) molybdenum trioxide and/or tungsten trioxide and (D) an inorganic filler, the improvement which comprises that the moulding material contains 85-95 wt.% (D) per total moulding material. Also claimed are electronic parts sealed with the epoxy resin moulding materials.

USE - The electronic parts sealed with the moulding materials includes TCP's, COB modules, hybrid IC's and multi-chip modules.

ADVANTAGE - The epoxy resin moulding materials contain no halogen and ~~atimony~~ and have excellent mouldability, heat resistance and fire retardancy and the electronic parts have excellent reliability and fire retardancy and less impact on environment on disposal after use.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/0

TITLE-TERMS: POLYEPOXIDE RESIN MOULD MATERIAL SEAL ELECTRONIC PART COMPRISE  
POLYEPOXIDE RESIN PHENOLIC COMPOUND MOLYBDENUM TRI. OXIDE TUNGSTEN  
TRI OXIDE INORGANIC FILL

DERWENT-CLASS: A21 A85 L03 U11

CPI-CODES: A05-A01E2; A08-D; A08-F; A08-R; A08-R01; A12-E04; A12-E07;  
L04-C20A;

EPI-CODES: U11-A07;

UNLINKED-DERWENT-REGISTRY-NUMBERS: 1408U; 1669U ; 1694U ; 1924U

ENHANCED-POLYMER-INDEXING:

Polymer Index [1.1]

018 ; D19 D18 D32 D76 G1570\*R G1558 D01 D11 D10 D23 D22 D3D42  
D50 D69 D73 D83 F47 7A ; P0464\*R D01 D22 D42 F47 ; H0011\*R ; M9999  
M2073 ; K9449

\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

### [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the electronic parts which closed the component with the epoxy resin molding compound for the electronic-parts closures which is excellent in a moldability, thermal resistance, and fire retardancy, and its molding material.

[0002]

[Description of the Prior Art] Components for electronic parts, such as a transistor and IC, have viewpoints, such as productivity and cost, to a resin seal in use. Since it excels in an electrical property, cost, workability, etc., the epoxy resin is mainly used for this resin for the closures. However, since fire retardancy of an epoxy resin is inadequate, its flameproofing is indispensable. Considering as the effective flame retarder which carries out flameproofing of the epoxy resin of this application conventionally, using together antimony oxide, such as a large antimony trioxide of the synergistic effect of a bromine system flame retarder and a bromine system flame retarder and antimony pentoxide, and adding is performed.

[0003]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] As for use of halogen (bromine) system flame retarders including the deca bromine generation of dioxin is suspected to be at the time of combustion, or strong toxic antimony oxide, the disposal approach of industrial waste or used electronic parts which comes out in the manufacture process of electronic parts has many problems about environmental protection or safety, and the demand of regulation is becoming strong. Moreover, it is known that bromine ion will have a bad influence on the elevated-temperature neglect property of the plastics closure IC, and reduction of a bromine system flame retarder is desired also from this viewpoint.

[0004] From such a situation, various non halogens and a non antimony system flame retarder are proposed. For example, although flameproofing of an epoxy resin molding compound is possible for metal hydrates, such as an aluminum hydroxide and a magnesium hydroxide, by adding so much, neither the hardenability of a molding material, the water absorption property of a hardened material nor an adhesive property is excellent, and, as for the electronic parts by which the closure was carried out with the molding material, dependability, such as solder thermal resistance, falls. Also in the system flame retarder in which \*\*\*\*\*, a phosphoric acid compound, etc. are not, a problem is in a moldability or the property after the closure. Moreover, although the thing with flame retarders, such as a bromine system flame-retarder metallurgy group hydroxide, used together and blended is performed considering the metallic oxide as a low emitting smoke-ized agent and a fire-resistant assistant, troubles, such as environmental safety, a moldability, and dependability, are not fully solved (JP,59-182546,A, JP,7-806085,A, Patent Publication Heisei 7-506623).

[0005] Fire retardancy and the moldability of this invention are good at a non halogen and non antimony, and it tends to offer the electronic parts which closed the component with the epoxy resin molding compound for the electronic-parts closures which is excellent in dependability, and its molding material.

[0006]

[Means for Solving the Problem] the result of having repeated examination wholeheartedly in order that artificers might solve the above-mentioned technical problem -- as a flame retarder -- a molybdenum trioxide -- and -- or, using the tungstic trioxide, by blending with the bulking agent of the amount of specification, it finds out that the above-mentioned purpose can be attained and came to complete this invention.

[0007] This invention Namely, the (1) and (A) epoxy resin, the (B) phenolic compound, Or it is the molding material which uses a tungstic trioxide and the (D) inorganic bulking agent as an indispensable component. (C) -- a molybdenum trioxide -- and -- (D) The epoxy resin molding compound for the electronic-parts closures to which the content of a component is characterized by being 85 - 95 % of the weight to the whole molding material, (2) The content of the inorganic bulking agent of the (D) component receives the whole molding material. The epoxy resin molding compound for the electronic-parts closures given in 89 - above-mentioned [ which are characterized by being 95 % of the weight ] (1), (3) -- the electronic parts which close a component by the epoxy resin molding compound for the electronic-parts closures the above (1) or given in (2), and are obtained -- it comes out.

[0008]

4 [Embodiment of the Invention] As an epoxy resin of the (A) component used in this invention Although it is generally used by the epoxy resin molding compound for the electronic-parts closures and there is especially no limitation, for example What carried out epoxidation of the novolak resin of phenols including a phenol novolak mold epoxy resin and polyglycidyl ether of o-cresol-form aldehyde novolac, and aldehydes, Diglycidyl ether, such as bisphenol A, Bisphenol F, Bisphenol S, and alkylation biphenol, The glycidyl amine mold epoxy resin obtained by the reaction of polyamine and epichlorohydrin, such as diamino diphenylmethane and isocyanuric acid, the line oxidized and obtained by peroxy acids, such as a peracetic acid, in olefin association -- there are an aliphatic series epoxy resin, an alicycle group epoxy resin, etc., and independent in these -- or any number of kinds can be used together and used suitably. Especially a biphenyl mold epoxy resin is suitable.

10

[0009] It is what works as a curing agent of an epoxy resin (A) as a phenolic compound of the (B) component used in this invention. Although there is especially no limit, for example A phenol, cresol, a xylenol, Phenols or alpha-naphthol, such as hydroquinone, resorcinol, a catechol, bisphenol A, and Bisphenol F, Naphthols, formaldehyde, such as beta-naphthol and dihydroxy naphthalene, An acetaldehyde, propionaldehyde, a benzaldehyde, Aldehydes, such as salicylaldehyde Phenol resin which has the aralkyl mold phenol resin; dicyclopentadiene frame which has the xylylene frame compounded from condensation, or the resin; phenols which are made to carry out copolycondensation and are obtained and dimethoxy paraxylene under an acid catalyst; There is naphthol resin which has a xylylene frame. independent -- or two or more kinds may be used together.

[0010] Moreover, the hardening accelerator which promotes the hardening reaction of an epoxy resin and phenol resin can be used if needed. As this hardening accelerator, for example A diazabicyclo alkene and its derivatives, such as 1 and 8-diazabicyclo (5, 4, 0) undecene -7, Triethylenediamine, benzyl dimethylamine, triethanolamine, The third class amines, such as dimethylamino ethanol and a tris (dimethyl aminomethyl) phenol, 2-methylimidazole, 2-phenylimidazole, 2-phenyl-4-methylimidazole, Imidazole derivatives, such as 2-heptadecylimidazole, tributyl phosphine, Organic phosphines, such as methyl diphenylphosphine and triphenyl phosphine Tetra-permutation phosphonium tetra-permutation borate, such as tetra-phenyl phosphonium tetraphenyl borate, There are tetraphenylboron salts, such as 2-ethyl-4-methylimidazole tetraphenyl borate and N-methyl morpholine tetraphenyl borate, etc.

[0011] the metallic oxide used as a flame retarder in this invention -- the molybdenum trioxide of the (C) component -- and -- or it is a tungstic trioxide. Although especially a limit does not have the loadings, 1 - 20 weight section is desirable to the epoxy resin 100 weight section, and 3 - 15 weight section is still more desirable. If fewer than 1 weight section, fire retardancy will become inadequate, and if it blends mostly rather than 20 weight sections, it will become easy to come to a moldability out of a bad influence.

[0012] Although there is especially no limit as an inorganic bulking agent of the (D) component used in this invention, single crystal fiber, such as fine particles, such as fused silica, a crystal silica, an alumina, zircon, a calcium silicate, a calcium carbonate, silicon carbide, boron nitride, beryllia, and a zirconia, or a bead which conglomerated these, potassium titanate, silicon carbide, silicon nitride, and an alumina, one or more kinds of glass fibers, etc. can be blended, and can be used. furthermore, as an inorganic bulking agent with fire-resistant effectiveness, an aluminum hydroxide, a magnesium hydroxide, zinc borate, etc. are raised, and independent in these -- or it can also use together and use. In the above-mentioned inorganic bulking agent, an alumina is desirable from a viewpoint of high temperature conductivity [ fused silica ] from a viewpoint of coefficient-of-linear-expansion reduction. As for a bulking agent configuration, it is desirable to make 50% or more spherical from the point of the fluidity at the time of shaping and metal mold abrasiveness, and it is desirable. [ of especially spherical fused silica ]

[0013] The loadings of a minerals bulking agent are 85 - 95 % of the weight to the whole molding material, and 89 - 95 % of the weight is especially suitable for them. Shaping is difficult when [ than 95 % of the weight ] more [ sufficient fire retardancy will not be acquired if fewer than 85 % of the weight, and ].

[0014] In the epoxy resin molding compound in this invention, metal hydrates, such as a system flame retarder in which nitrogen flame retardants, such as a melamine and an isocyanuric acid compound, \*\*\*\*\*, a phosphoric acid compound, etc. are not other than the above-mentioned indispensable component, an aluminum hydroxide, and a magnesium hydroxide, etc. can be suitably added as a fire-resistant assistant. Flexibilizers, such as coupling agents, such as coloring agents, such as release agents, such as a higher fatty acid, a higher-fatty-acid metal salt, an ester system wax, and a polyolefine system wax, and carbon black, an epoxy silane, an amino silane, an ureido silane, vinylsilane, an alkyl silane, organic titanate, and aluminum alcoholate, and silicone powder, etc. can be used if needed as other additives.

[0015] If distributed mixing of the various raw materials can be carried out at homogeneity, no matter what technique it may use, it can prepare, but after mixing the raw material of predetermined loadings enough by a mixer etc. as general technique and the molding material in this invention carries out melting kneading with a roll mill, an extruder, etc., it can mention the approach of cooling and pulverizing.

[0016] Components, such as passive elements, such as active elements, such as a semiconductor chip, a transistor, diode, and a thyristor, a capacitor, a resistor, and a coil, can be carried in supporter material, such as a leadframe, a tape carrier [ finishing / wiring ], a patchboard, glass, and a silicon wafer, a required part can be closed with the molding material for the closures of this invention, and electronic parts can be manufactured. TCP which closed the semiconductor chip connected to the tape carrier by the bump with the molding material of this invention as such electronic parts, for example can be mentioned. Moreover, the COB module which closed passive elements, such as active elements, such as a semiconductor chip connected to wiring formed on a patchboard or glass with wire bonding, flip chip bonding, solder, etc., a transistor, diode, and a thyristor, and/or a capacitor, a resistor, and a coil, with the molding material of this invention, a hybrid IC, a multi chip module, etc. can be mentioned. As an approach of closing electronic parts, although the low voltage transfer-molding method is the most common, the injection fabricating method, compression forming, etc. may be used.

[0017]

[Example] Next, although an example explains this invention, the range of this invention is not limited to these examples.

[0018] A raw material is \*\*\*\*(ed) by the combination shown in one to example 3 table 1, and preliminary mixing is performed. Then, with a 2 shaft roll with a skin temperature of about 80 degrees C, melting kneading was carried out for 10 minutes, it cooled and ground, and the molding material of examples 1-3 was produced. a biphenyl skeletal pattern epoxy resin -- weight per epoxy equivalent 188 and the product made from oil-ized shell epoxy with a melting point of 106 degrees C -- Epicoat YH-4000H -- aralkyl mold phenol resin -- a hydroxyl equivalent 167 and the Mitsui Toatsu Chemicals make of 70 degrees C of softening temperatures -- MIREKKUSU XL-225 were used.

[0019]

[Table 1]

表1

項目	実施例1	実施例2	実施例3
ビフェニル型エポキシ樹脂	100.0	100.0	100.0
アラルキル型フェノール樹脂	91.0	91.0	91.0
トリフェニルホスフィン	3.5	3.5	3.5
三酸化モリブデン	10.0	—	0.5
三酸化タングステン	—	10.0	
熔融シリカ	1950.0	1950.0	1950.0
カルナバワックス	1.0	1.0	1.0
ポリエチレンワックス	3.0	3.0	3.0
カーボンブラック	2.5	2.5	2.5
アルキルシラン	7.5	7.5	7.5
充填剤量 (wt%)	90	90	90

[0020] The molding material of the examples 1-4 of a comparison was produced by the combination shown in Table 2 like one to example of comparison 4 examples 1-3.

[Table 2]

表2

項目	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
ビフェニル型エポキシ樹脂	85.0	100.0	100.0	100.0
アラルキル型フェノール樹脂	84.0	91.0	91.0	91.0
トリフェニルホスフィン	3.5	3.5	3.5	3.5
三酸化モリブデン	—	—	—	10.0
熔融シリカ	1860.0	2150.0	1750.0	1150.0
臭素化エポキシ樹脂	15.0	—	—	—
三酸化二アンチモン	5.0	—	—	—
りん酸エステル	—	26.0	—	—
水酸化アルミニウム	—	—	200.0	—
カルナバワックス	1.0	1.0	1.0	1.0
ポリエチレンワックス	3.0	3.0	3.0	3.0
カーボンブラック	2.5	2.5	2.5	2.5
アルキルシラン	7.5	7.5	7.5	7.5
充填剤量 (wt%)	90	90	81	84

[0021] Using the transfer-molding machine, each following trial was performed and the die temperature of 180 degrees C, compacting pressure 6.9MPa, and the process condition for setting-time 90 seconds estimated the molding material obtained in the example and the example of a comparison.

(1) The metal mold which fabricates a disk with a degree-of-hardness diameter [ of 100mm ] and a thickness of 3mm at the time of heat was used, the molding material was fabricated with the transfer



press on 180 degrees C, 6.9MPa, and the conditions for 90 seconds, and it asked for the degree of hardness with the Shore hardness tester (D type) at the time of the heat of the mold goods immediately after shaping.

(2) In consideration of a moldability fluidity, hardenability, and a mold-release characteristic, it evaluated synthetically.

(3) The metal mold which fabricates a test piece with a fire-resistant thickness of 1/16 inch was used, the molding material was fabricated with the transfer press on 180 degrees C, 6.9MPa, and the conditions for 90 seconds, and postcure was carried out at 175 degrees C for 6 hours. Evaluation followed the UL94 perpendicular examining method.

(3) The test piece with a water absorption diameter [ of 50mm ] and a thickness of 5mm was fabricated by the predetermined process condition, and postcure was carried out at 175 degrees C for 6 hours. The water absorption after making it absorb moisture by RH 85 degrees C of moisture absorption conditions and 85% for 168 hours was measured.

(4) The semiconductor device was closed using solder thermal-resistance each molding material, and the semiconductor device of QFP80 pin was produced. After carrying out predetermined time moisture absorption on the moisture absorption conditions of RH 85 degrees C / 85%, it processed on the conditions for 215 degrees C / 90 seconds with VPS equipment, and the occurrences of a crack were measured.

[0022] The obtained evaluation result is shown in Table 3.

[Table 3]

表3

項目		実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
熱時硬度		83	83	83	85	70	55	81
成形性		good	good	good	good	fair	NG	good
難燃性(UL-94)		V-0	V-0	V-1	V-0	V-0	V-0	V-1
環境問題対応		good	good	good	NG	good	good	good
吸水率 (wt%)		0.16	0.16	0.16	0.16	0.19	0.19	0.16
はんだ耐熱性*	48h	0/5	0/5	0/5	0/5	1/5	1/5	0/5
	96h	0/5	0/5	0/5	0/5	-	-	0/5
	168h	0/5	0/5	0/5	0/5	-	-	1/5

\*クラック発生数/試験数

[0023] The examples 1-3 of this invention are all a non halogen and non antimony, and all examined properties, such as a degree of hardness, a moldability, moisture absorption, and solder thermal resistance, are excellent at the time of heat. It is fitness although the loadings of V-0 and a flame retarder are slightly inferior with V-1 in few examples 3 also about fire retardancy with examples 1 and 2. To it, in the examples 2 and 3 of a comparison which do not contain the flame retarder of this invention, it does not excel in a degree of hardness, a moldability, and solder thermal resistance at the time of heat, but water absorption is also inferior also in respect of high moisture resistance. Moreover, in the example 4 of a comparison with which the content of a bulking agent does not fill this invention, solder thermal resistance is inferior and fire retardancy is not V-1 and best, either. Although the example 1 of a comparison is excellent like the example in respect of the property, since a bromine system flame retarder and antimony oxide are used, an environmental problem action is inadequate.

[0024]

[Effect of the Invention] Since it excels in a moldability and dependability and a bromine system flame retarder and antimony oxide are not included by this invention, the environment-friendly fire-resistant epoxy resin molding compound for the electronic-parts closures is obtained. Furthermore, since effect can obtain few electronic parts by the environment by closing a component using this molding material at the time of the disposal after dependability, fire-resistant \*\*\*\*, and use, that industrial value is size.

\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1] (A) an epoxy resin, the (B) phenolic compound, and the (C) molybdenum trioxide -- and -- or the epoxy resin molding compound for electronic-parts closure to which it is the molding material which uses a tungstic trioxide and the (D) inorganic bulking agent as an indispensable component, and the content of the (D) component is characterized by being 85 - 95 % of the weight to the whole molding material.

[Claim 2] (D) The epoxy resin molding compound for electronic-parts closure according to claim 1 to which the content of the inorganic bulking agent of a component is characterized by being 89 - 95 % of the weight to the whole molding material.

[Claim 3] Electronic parts which close a component by the epoxy resin molding compound for electronic-parts closure according to claim 1 or 2, and are obtained.

---

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-212396

(43) 公開日 平成10年(1998) 8月11日

(51) Int.Cl. <sup>8</sup>	識別記号	F I	
C 0 8 L 63/00		C 0 8 L 63/00	C
C 0 8 G 59/00		C 0 8 G 59/00	
C 0 8 K 3/22		C 0 8 K 3/22	
	5/13	5/13	
H 0 1 L 23/29		H 0 1 L 23/30	B
審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 5 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願平9-16527

(22) 出願日 平成9年(1997) 1月30日

(71) 出願人 000004455

日立化成工業株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

(72) 発明者 斎藤 裕之

茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式  
会社筑波開発研究所内

(72) 発明者 高橋 佳弘

茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式  
会社筑波開発研究所内

(72) 発明者 萩原 伸介

茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式  
会社筑波開発研究所内

(74) 代理人 弁理士 若林 邦彦

(54) 【発明の名称】 電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料及び電子部品

(57) 【要約】

【課題】 ノンハロゲン、ノンアンチモンで難燃性、成形性が良好でかつ信頼性に優れる電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料及びその成形材料で素子を封止した電子部品を提供する。

【解決手段】 (A) エポキシ樹脂、(B) フェノール化合物、(C) 三酸化モリブデンおよびまたは三酸化タングステン、(D) 無機充填剤を必須成分とする成形材料であって、(D) 成分の含有量が成形材料全体に対して85～95重量%であることを特徴とする電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料、及びその成形材料により素子を封止して得られる電子部品。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】(A)エポキシ樹脂、(B)フェノール化合物、(C)三酸化モリブデンおよびまたは三酸化タングステン、(D)無機充填剤、を必須成分とする成形材料であって、(D)成分の含有量が成形材料全体に対して85～95重量%であることを特徴とする電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項2】(D)成分の無機充填剤の含有量が成形材料全体に対して89～95重量%であることを特徴とする請求項1記載の電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項3】請求項1または請求項2記載の電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料により素子を封止して得られる電子部品。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、成形性、耐熱性及び難燃性に優れた電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料及びその成形材料で素子を封止した電子部品に関する。

## 【0002】

【従来の技術】トランジスタ、IC等の電子部品用素子は、生産性、コスト等の観点から樹脂封止が主流となっている。この封止用樹脂には、電気特性、コスト、作業性等に優れたことからエポキシ樹脂が主に用いられている。しかし、エポキシ樹脂は難燃性が不十分なため難燃化が不可欠である。従来よりこの用途のエポキシ樹脂を難燃化する効果的な難燃剤として臭素系難燃剤と、臭素系難燃剤との相乗効果の大きい三酸化アンチモン、五酸化アンチモン等の酸化アンチモンとを、併用して添加することが行われている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】燃焼時にダイオキシンの生成が疑われているデカブロムをはじめとするハロゲン(臭素)系難燃剤や毒性の強い酸化アンチモンの使用は、電子部品の製造過程で産業廃棄物や使用済みの電子部品の処分方法など、環境保護や安全性についての問題が多く、規制の要求が強まってきている。また、プラスチック封止ICの高温放置特性に臭素イオンが悪影響を及ぼすことが知られており、この観点からも臭素系難燃剤の低減が望まれている。

【0004】このような状況から、種々のノンハロゲン、ノンアンチモン系難燃剤が提案されている。例えば、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等の金属水和物は多量に添加する事によりエポキシ樹脂成形材料の難燃化が可能であるが、成形材料の硬化性、硬化物の吸水特性や接着性などが優れず、その成形材料で封止された電子部品はんだ耐熱性などの信頼性が低下する。赤りん、りん酸化合物などのりん系難燃剤においても成形性や封止後の特性に問題がある。また、金属酸化物を低発煙化剤、難燃助剤として臭素系難燃剤や金属水酸化

物等の難燃剤との併用して配合することが行われているが、環境安全性や成形性、信頼性といった問題点は十分に解決されていない(特開昭59-182546、特開平7-806085、特表平7-506623)。

【0005】本発明は、ノンハロゲン、ノンアンチモンで難燃性、成形性が良好でかつ信頼性に優れた電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料及びその成形材料で素子を封止した電子部品を提供しようとするものである。

## 【0006】

【課題を解決するための手段】発明者らは上記の課題を解決するために鋭意検討を重ねた結果、難燃剤として三酸化モリブデンおよびまたは三酸化タングステンを用い、特定量の充填剤とともに配合することにより、上記の目的を達成しうることを見だし、本発明を完成するに至った。

【0007】すなわち、本発明は、

(1)(A)エポキシ樹脂、(B)フェノール化合物、(C)三酸化モリブデンおよびまたは三酸化タングステン、(D)無機充填剤を必須成分とする成形材料であって、(D)成分の含有量が成形材料全体に対して85～95重量%であることを特徴とする電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料、

(2)(D)成分の無機充填剤の含有量が成形材料全体に対して89～95重量%であることを特徴とする上記(1)記載の電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料、

(3)上記(1)または(2)記載の電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料により素子を封止して得られる電子部品、である。

## 【0008】

【発明の実施の形態】本発明において用いられる(A)成分のエポキシ樹脂としては、電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料で一般に使用されているもので特に限定はないが、たとえば、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂をはじめとするフェノール類とアルデヒド類のノボラック樹脂をエポキシ化したもの、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、アルキル置換ビフェノールなどのジグリシジルエーテル、ジアミノジフェニルメタン、イソシアヌル酸などのポリアミンとエピクロロヒドリンの反応により得られるグリシジリアミン型エポキシ樹脂、オレフィン結合を過酢酸などの過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂、及び脂環族エポキシ樹脂などがあり、これらを単独または適宜何種類でも併用して用いることができる。特にビフェニル型エポキシ樹脂が好適である。

【0009】本発明において用いられる(B)成分のフェノール化合物としてはエポキシ樹脂(A)の硬化剤として働くものであり、特に制限はないが、例えば、フェノール、クレゾール、キシレノール、ハイドロキノン、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェ

ノールFなどのフェノール類又は $\alpha$ -ナフトール、 $\beta$ -ナフトール、ジヒドロキシナフタレンなどのナフトール類とホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒドなどのアルデヒド類とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られる樹脂；フェノール類とジメトキシパラキシレンから合成されるキシリレン骨格を有するアラルキル型フェノール樹脂；ジシクロペンタジエン骨格を有するフェノール樹脂；キシリレン骨格を有するナフトール樹脂などがあり、単独又は2種類以上併用してもよい。

【0010】また、エポキシ樹脂とフェノール樹脂の硬化反応を促進する硬化促進剤を必要に応じて使用することができる。この硬化促進剤としては、例えば、1, 8-ジアザビシクロ(5, 4, 0)ウンデセン-7などのジアザビシクロアルケン及びその誘導体、トリエチレンジアミン、ベンジルジメチルアミン、トリエタノールアミン、ジメチルアミノエタノール、トリス(ジメチルアミノメチル)フェノールなどの三級アミン類、2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾールなどのイミダゾール類、トリブチルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィンなどの有機ホスフィン類、テトラフェニルホスホニウム・テトラフェニルボレートなどのテトラ置換ホスホニウム・テトラ置換ボレート、2-エチル-4-メチルイミダゾール・テトラフェニルボレート、N-メチルモルホリン・テトラフェニルボレートなどのテトラフェニルボロン塩などがある。

【0011】本発明において難燃剤として用いる金属酸化物は、(C)成分の三酸化モリブデンおよびまたは三酸化タングステンである。その配合量は特に制限はないが、エポキシ樹脂100重量部に対して1~20重量部が好ましく、3~15重量部がさらに好ましい。1重量部より少ないと難燃性が不十分となり、20重量部よりも多く配合すると成形性に悪影響が出やすくなる。

【0012】本発明において用いられる(D)成分の無機充填剤としては特に制限はないが、熔融シリカ、結晶シリカ、アルミナ、ジルコン、珪酸カルシウム、炭酸カルシウム、炭化珪素、窒化ホウ素、ベリリア、ジルコニア、などの粉体、又はこれらを球形化したビーズ、チタン酸カリウム、炭化珪素、窒化珪素、アルミナなどの単結晶繊維、ガラス繊維などを1種類以上配合して用いることができる。さらに、難燃効果のある無機充填剤としては水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、硼酸亜鉛などが上げられ、これらを単独または併用して用いることもできる。上記の無機充填剤の中で、線膨張係数低減の観点からは熔融シリカが、高熱伝導性の観点からはアルミナが好ましい。充填剤形状は成形時の流動性及び金型摩耗性の点から50%以上を球状とする事が好ましく、特に球状熔融シリカが好ましい。

【0013】無機質充填剤の配合量は、成形材料全体に対して85~95重量%であり、特に89~95重量%が好適である。85重量%より少ないと十分な難燃性が得られず、95重量%より多いと成形が難しい。

【0014】本発明におけるエポキシ樹脂成形材料には、上記必須成分以外に、メラミン、イソシアヌル酸化合物等の窒素系難燃剤、赤りん、りん酸化合物等のりん系難燃剤、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等の金属水和物を難燃助剤として適宜添加する事ができる。その他の添加剤として高級脂肪酸、高級脂肪酸金属塩、エステル系ワックス、ポリオレフィン系ワックスなどの離型剤、カーボンブラックなどの着色剤、エポキシシラン、アミノシラン、ウレイドシラン、ビニルシラン、アルキルシラン、有機チタネート、アルミニウムアルコールなどのカップリング剤、シリコーンパウダなどの可撓剤などを必要に応じて用いることができる。

【0015】本発明における成形材料は、各種原材料を均一に分散混合できるのであれば、いかなる手法を用いても調製できるが、一般的な手法として、所定の配合量の原材料をミキサー等によって十分混合した後、ミキシングロール、押出機等によって熔融混練した後、冷却、粉碎する方法を挙げることができる。

【0016】リードフレーム、配線済みのテープキャリア、配線板、ガラス、シリコンウエハなどの支持部材に、半導体チップ、トランジスタ、ダイオード、サイリスタなどの能動素子、コンデンサ、抵抗体、コイルなどの受動素子等の素子を搭載し、必要な部分を本発明の封止用成形材料で封止して、電子部品を製造することができる。このような電子部品としては、たとえば、テープキャリアにバンパで接続した半導体チップを、本発明の成形材料で封止したTCPを挙げることができる。また、配線板やガラス上に形成した配線に、ワイヤーボンディング、フリップチップボンディング、はんだなどで接続した半導体チップ、トランジスタ、ダイオード、サイリスタなどの能動素子及び/又はコンデンサ、抵抗体、コイルなどの受動素子を、本発明の成形材料で封止したCOBモジュール、ハイブリッドIC、マルチチップモジュールなどを挙げることができる。電子部品を封止する方法としては、低圧トランスファー成形法が最も一般的であるが、インジェクション成形法、圧縮成形法等を用いてもよい。

【0017】

【実施例】次に実施例により本発明を説明するが、本発明の範囲はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0018】実施例1~3

表1に示す配合で原料を秤取し、予備混合を行う。その後、表面温度約80℃の二軸ロールで10分間熔融混練し、冷却・粉碎して実施例1~3の成形材料を作製した。ビフェニル骨格型エポキシ樹脂はエポキシ当量188、融点106℃の油化シェルエポキシ製エビコートY

H-4000Hを、アラルキル型フェノール樹脂は水酸 \*【0019】  
基当量167、軟化点70℃の三井東圧製ミレックスX 【表1】  
L-225を用いた。 \*

表1

項目	実施例1	実施例2	実施例3
ビフェニル型エポキシ樹脂	100.0	100.0	100.0
アラルキル型フェノール樹脂	91.0	91.0	91.0
トリフェニルホスフィン	3.5	3.5	3.5
三酸化モリブデン	10.0	-	0.5
三酸化タングステン	-	10.0	
溶融シリカ	1950.0	1950.0	1950.0
カルナバワックス	1.0	1.0	1.0
ポリエチレンワックス	3.0	3.0	3.0
カーボンブラック	2.5	2.5	2.5
アルキルシラン	7.5	7.5	7.5
充填剤量 (wt%)	90	90	90

【0020】比較例1~4

※成形材料を作製した。

実施例1~3と同様に表2に示す配合で比較例1~4の※ 【表2】

表2

項目	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
ビフェニル型エポキシ樹脂	85.0	100.0	100.0	100.0
アラルキル型フェノール樹脂	84.0	91.0	91.0	91.0
トリフェニルホスフィン	3.5	3.5	3.5	3.5
三酸化モリブデン	-	-	-	10.0
溶融シリカ	1860.0	2150.0	1750.0	1150.0
臭素化エポキシ樹脂	15.0	-	-	-
三酸化二アンチモン	5.0	-	-	-
りん酸エステル	-	26.0	-	-
水酸化アルミニウム	-	-	200.0	-
カルナバワックス	1.0	1.0	1.0	1.0
ポリエチレンワックス	3.0	3.0	3.0	3.0
カーボンブラック	2.5	2.5	2.5	2.5
アルキルシラン	7.5	7.5	7.5	7.5
充填剤量 (wt%)	90	90	81	84

【0021】実施例及び比較例で得られた成形材料を、トランスファ成形機を用い、金型温度180℃、成形圧力6.9MPa、硬化時間90秒の成形条件で次の各試験を行い、評価した。

(1) 熱時硬度

直径100mm、厚さ3mmの円板を成形する金型を使用し、トランスファプレスにて180℃、6.9MPa、90秒の条件で成形材料を成形し、成形直後の成形★50

★品の熱時硬度をショア硬度計(Dタイプ)により求めた。

(2) 成形性

流動性、硬化性、離型性を考慮し、総合的に評価した。

(3) 難燃性

厚さ1/16インチの試験片を成形する金型を使用し、トランスファプレスにて180℃、6.9MPa、90秒の条件で成形材料を成形し、175℃で6時間後硬化

させた。評価はUL94垂直試験法に従った。

(3) 吸水率

直径50mm、厚さ5mmの試験片を所定の成形条件で成形し、175℃で6時間後硬化させた。吸湿条件85℃/85%RHで168時間吸湿させた後の吸水率を測定した。

(4) はんだ耐熱性

表3

項目	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
熱時硬度	83	83	83	85	70	55	81
成形性	good	good	good	good	fair	NG	good
難燃性(UL-94)	V-0	V-0	V-1	V-0	V-0	V-0	V-1
環境問題対応	good	good	good	NG	good	good	good
吸水率 (wt%)	0.16	0.16	0.16	0.16	0.19	0.19	0.16
はんだ耐熱性*	48h	0/5	0/5	0/5	1/5	1/5	0/5
	96h	0/5	0/5	0/5	-	-	0/5
	168h	0/5	0/5	0/5	-	-	1/5

\*クラック発生数/試験数

【0023】本発明の実施例1～3は、いずれもノンハロゲン、ノンアンチモンで、熱時硬度、成形性、吸水率、はんだ耐熱性等の試験した全ての特性が優れている。難燃性に関しても実施例1、2ではV-0、難燃剤の配合量が少ない実施例3ではV-1とわずかに劣るものの良好である。それに対して、本発明の難燃剤を含まない比較例2、3では、熱時硬度、成形性、はんだ耐熱性に優れず、吸水率も高く耐湿性の面でも劣っている。また、充填剤の含有量が本発明を満たさない比較例4においては、はんだ耐熱性が劣り難燃性もV-1と最良ではない。比較例1は特性面では実施例と同様に優れてい※30

\*各成形材料を用いて半導体素子を封止し、QFP80ピンの半導体装置を作製した。85℃/85%RHの吸湿条件で所定時間吸湿させた後、VPS装置により215℃/90秒の条件で処理を行い、クラックの発生数を測定した。

【0022】得られた評価結果を表3に示す。

\* 【表3】

20※るが、臭素系難燃剤と酸化アンチモンを用いているので環境問題対応が不十分である。

【0024】

【発明の効果】本発明によって、成形性、信頼性に優れ、かつ臭素系難燃剤及び酸化アンチモンを含まないので環境にやさしい難燃性の電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料が得られる。さらに、この成形材料を用いて素子を封止することにより、信頼性、難燃性優れ、使用後の処分時において環境に影響が少ない電子部品を得ることができるので、その工業的価値は大である。

フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>6</sup>

識別記号

F I

H 0 1 L 23/31